

This Page Is Inserted by IFW Operations  
and is not a part of the Official Record

## **BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning documents *will not* correct images,  
please do not report the images to the  
Image Problem Mailbox.**

coll. 4-639-468

DEUTSCHE DEMOKRATISCHE REPUBLIK

PATENTCHRIFT



(12) Wirtschaftspatent

(19) DD (11) 217 513 A1

Erteilt gemäß § 17 Absatz 1 Patentgesetz

3(51) C 07 C 103/50

AMT FÜR ERFINDUNGS- UND PATENTWESEN

In der vom Anmelder eingereichten Fassung veröffentlicht

(21) WP C 07 C / 250 114 2 (22) 22.04.83 (44) 16.01.85

(71) VEB Deutsches Hydrierwerk Rodleben, 4530 Roßlau, Postfach 140, DD  
(72) Kitzing, Gerhard; Mundo, Axel, Dipl.-Chem., DD

(54) Verfahren zur Herstellung von N,N-Dialkylglycinamiden

(57) Die Erfindung betrifft ein Verfahren zur Herstellung von N,N-Dialkylglycinamiden durch Umsetzung von N,N-Dimethyl- bzw. N,N-Diethylaminoessigsäure und/oder deren Alkalisalzen mit primären und/oder sekundären Fettaminen der Alkylkettenlänge C<sub>7</sub> bis C<sub>22</sub> in Gegenwart von 0,1 bis 1,1 Mol einer Säure, vorzugsweise Salzsäure, wobei man so verfährt, daß man die Reaktionskomponenten im wässrigen Medium bei Temperaturen von 20 bis 80 °C reagieren läßt und anschließend bei Temperaturen bis maximal 220 °C das im Reaktionsgemisch befindliche und das bei der Reaktion entstehende Wasser aus dem Reaktionssystem gegebenenfalls unter Einleitung eines Inertgases entfernt. Das erfindungsgemäße Verfahren ergibt besonders bei Einsatz der Alkalisalze der N,N-Dimethylaminoessigsäure nahezu 100%ige Umsetzungsgrade. Die nach der Erfindung hergestellten Verbindungen sind vielseitig sowohl als tertiäre Amidoamine als auch in Gestalt ihrer leicht herstellbaren Aminoxide, Betaine und quaternären Ammoniumverbindungen einsetzbar als Korrosionsschutzmittel, dermatologisches Schutzensid in der Kosmetik und Haushaltchemie, Desinfektionsmittelwirkstoff, Bakterizid, Konservierungsmittel und Textilhilfsmittel sowie als Emulgier- und Adhäsionsmittel in der Baustoff- und Erdölindustrie.

ISSN 0433-6461

4 Seiten



(12) Wirtschaftspatent

Erteilt gemäß § 17 Absatz 1 Patentgesetz

(19) DD (11) 217 513 A1

3(51) C 07 C 103/50

AMT FÜR ERFINDUNGS- UND PATENTWESEN

In der vom Anmelder eingereichten Fassung veröffentlicht

(21) WP C 07 C / 250 114 2

(22) 22.04.83

(44) 16.01.85

(71) VEB Deutsches Hydrierwerk Rodleben, 4530 Roßlau, Postfach 140, DD

(72) Kitzing, Gerhard; Mundo, Axel, Dipl.-Chem., DD

(54) Verfahren zur Herstellung von N,N-Dialkylglycinamiden

(57) Die Erfindung betrifft ein Verfahren zur Herstellung von N,N-Dialkylglycinamiden durch Umsetzung von N,N-Dimethyl- bzw. N,N-Diethylaminoessigsäure und/oder deren Alkalisalzen mit primären und/oder sekundären Fettaminen der Alkylkettenlänge  $C_7$  bis  $C_{22}$  in Gegenwart von 0,1 bis 1,1 Mol einer Säure, vorzugsweise Salzsäure, wobei man so verfährt, daß man die Reaktionskomponenten im wässrigen Medium bei Temperaturen von 20 bis 80 °C reagieren läßt und anschließend bei Temperaturen bis maximal 220 °C das im Reaktionsgemisch befindliche und dabei bei der Reaktion entstehende Wasser aus dem Reaktionssystem gegebenenfalls unter Einleitung eines Inertgases entfernt. Das erfindungsgemäße Verfahren ergibt besonders bei Einsatz der Alkalisalze der N,N-Dimethylaminoessigsäure nahezu 100%ige Umsetzungsgrade. Die nach der Erfindung hergestellten Verbindungen sind vielseitig sowohl als tertiäre Amidoamine als auch in Gestalt ihrer leicht herstellbaren Aminoxide, Betaine und quaternären Ammoniumverbindungen einsetzbar als Korrosionsschutzmittel, dermatologisches Schutzensid in der Kosmetik und Haushaltchemie, Desinfektionsmittelwirkstoff, Bakterizid, Konservierungsmittel und Textilhilfsmittel sowie als Emulgier- und Adhäsionsmittel in der Baustoff- und Erdölindustrie.

ISSN 0433-6461

4 Seiten

Zur PS Nr. 217.513.

ist eine Zeitschrift erschienen.

(Teilw ise bestätigt gem. § 18 Abs. 1 d. Änd.Ges.z.Pat.Ges.)

## Verfahren zur Herstellung von N,N-Dialkylglycinamiden

### Gegenstand der Erfindung

Gegenstand der Erfindung ist ein Verfahren der direkten Herstellung von N,N-Dialkylglycinamiden, die als tertiäre Aminoamide direkt oder in Gestalt ihrer leicht herstellbaren Aminoxide, Betaine und quaternären Ammoniumverbindungen vorteilhaft einsetzbar sind, insbesondere als Korrosionsschutzmittel, dermatologisches Schutzmittel in der Kosmetik und Haushaltschemie, Desinfektionsmittelwirkstoff, Bakterizid, Konservierungsmittel und Textilhilfsmittel sowie als Emulgator- und Adhäsionsmittel in der Baustoff- und Erdölindustrie.

### Charakteristik der bekannten technischen Lösungen

Bereits die US-Ps 2317999 beschreibt die Herstellung von N,N-Dimethyl-glycin-dodecylamid aus Chloressigsäuredodecylamid und Dimethylamin in Ethanol bei 90°C bis 100°C. Die Herstellung der analogen Verbindung N,N-Dimethyl-glycin-octadecylamid ist Gegenstand der US-PS 2256186, wobei die Herstellung der verwendeten Ausgangsverbindung

Chloressigsäureoctadecylamid nicht näher beschrieben ist. Ein in der Technik gern angewendetes Verfahren ist die Herstellung von Dimethylaminoessigsäurebutylester aus Chloressigsäurebutylester und Dimethylamin und dessen anschließender Verseifung unter Einsatz von Aminoverbindungen (Am. Soc. 62 [1940] S. 271).

Zur Darstellung von Aminosäureamiden haben vor allem unsymmetrische Anhydride, insbesondere diejenigen der N-Acylaminosäuren mit sauerstoffhaltigen organischen oder anorganischen Säuren, als Acylierungsmittel größere Bedeutung erlangt. So beschreibt die DE-AS 1 001 277 die Einführung von Dialkylaminoacylgruppen in Amine durch Anwendung gemischter Anhydride aus Dialkylaminocarbonsäuren und Benzoesäure.

Amide von Aminosäuren lassen sich auch aus den sogenannten Leuchsschen Verbindungen, den inneren Anhydriden von N-Carboxyl- $\alpha$ -amino-carbonsäuren, gewinnen (Houben Weyl Bd. 11/2, S. 374).

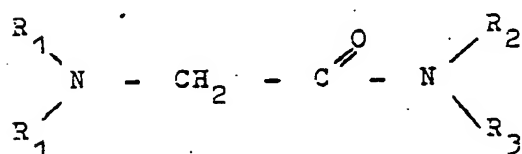
Die direkte Amidierung von Dialkylaminocarbonsäuren mit primären und/oder sekundären Fettaminen ist bisher in der Literatur nicht beschrieben. Erklärbar wird dies gegebenenfalls aus der bei Aminocarbonsäuren vorgegebenen reaktionsträgen Ampholytstruktur und aus der Tatsache, daß bereits die relevante Amidierung von Alkylcarbonsäuren durch thermische und/oder katalytische Abspaltung des Reaktionswassers meist nur zu unbefriedigenden Umsetzungsgraden führt und in bezug auf die in der Literatur vielfach beschriebenen Acylierungsmöglichkeiten von NH-Gruppen nur von untergeordneter Bedeutung ist bzw. kaum eine technische Alternative darstellt.

### Ziel der Erfindung

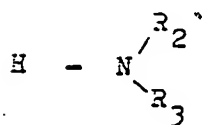
Ziel der Erfindung ist ein Verfahren der Herstellung von N,N-Dialkylglycinamiden auch direkte Umsetzung von N,N-Dialkylaminocarbonsäuren und/oder deren Alkalimetallsalzen mittels primären und/oder sekundären Fettaminen, welches technologisch einfach durchführbar ist und gleichzeitig zu hohen Ausbeuten führt.

### Darlegung des Wesens der Erfindung

Es wurde gefunden, daß N,N-Dialkylglycinamiden der allgemeinen Formel



wobei  $R_1 = CH_3, C_2H_5$  und  $R_2 =$  Alkylrest, deren Gesamtkohlenstoffzahl 7 bis 22 beträgt,  $R_3 = R_2, H$  bedeuten, sich sehr leicht durch direkte Umsetzung der entsprechenden N,N-Dialkylaminoessigsäure und/oder deren Alkalisalze mit Fettaminen der Formel



herstellen lassen, wenn man bezogen auf molare Ansatzgrößen die Reaktionskomponenten zunächst in wäßriger Lösung bei Temperaturen von 20°C bis 80°C in Gegenwart von 0,1 bis 1,1 M einer starken Säure, vorzugsweise Salzsäure, miteinander reagieren läßt, wobei der Wassergehalt in der Reaktionsmischung 5 bis 45 Gew.-% beträgt und anschließend durch Erwärmung der Reaktionsmischung auf Temperatur n bis 220°C, gegebenenfalls unter Einleitung von Inertgasen, das im Reaktionsgemisch vorhandene als auch das infolge der Amidierungsreaktion entstehende Wasser entfernt.

Wie bereits erwähnt, ist die direkte Umsetzung von N,N-Dialkylaminoessigsäure mit primären und/oder sekundären Fettaminen bisher nicht zur anwendungstechnischen Reife gelangt. Eine mögliche Ursache ist in der stabilen, reaktionsträgen Amphoterie der Aminoessigsäure gegeben.

Überraschenderweise gelingt es, erfindungsgemäß durch Zusatz von Säuren, vorzugsweise Mineralsäuren, diese N,N-Dialkylaminoessigsäure im wäßrigen Medium zu aktivieren bzw. ihr ampholytisches Reaktionsverhalten derart zu beeinflussen, daß befriedigende Amidierungsgrade erhalten werden. Gleichzeitig wurde gefunden, daß nahezu 100%ige Umsetzungsgrade erzielt werden, wenn anstelle der N,N-Dialkylaminoessigsäure ihre Alkalisalze bei dem erfindungsgemäßen Verfahren eingesetzt werden.

Das erfindungsgemäße Verfahren eröffnet die Möglichkeit der direkten Verwendung von Alkalisalzen der N,N-Dialkylaminoessigsäure, deren Herstellung vielfach geübt und seit langem im großtechnischen Maßstab praktiziert wird und stellt bei besonderer Berücksichtigung materialökonomischer und technologischer Gesichtspunkte sowie bezogen auf die Verfügbarkeit mehr als nur eine Alternative zum traditionellen Verfahren der Herstellung von N,N-Dimethylaminoglycinalkylamiden über den Syntheseweg Monochloressigsäureester zum Dimethylaminoessigsäureester dar.

Das erfindungsgemäße Verfahren wird an folgenden Beispielen näher erläutert.

#### Beispiel 1

Ein Mol einer 60%igen wässrigen N,N-Dimethylaminoessigsäurelösung wird in einem Reaktionsgefäß unter Rühren von 1 Mol Dodecylamin versetzt. Das enthaltene und entstehende Wasser wird am Veresterungsaufsatz bei Temperaturen von 100°C bis 180°C unter ständigem Rühren abgetrennt. Mit Beendigung der Wasserabscheidung besitzt das Reaktionsprodukt einen Amidierungsgrad von 52,4%.

#### Beispiel 2

Wie Beispiel 1, wobei zusätzlich in das Reaktionsgemisch 0,1 Mol konzentrierte Salzsäure zugegeben wird. Nach Beendigung der Wasserabscheidung beträgt der Amidierungsgrad 70,3%.

#### Beispiel 3

Auf der Grundlage molarer Ansatzmengen werden in einem Reaktionsgefäß 189 g einer 70%igen wässrigen Lösung aus N,N-Dimethylaminoessigsäurem Kaliumsalz mit 100,6 g konzentrierter Salzsäure und 190 g eines primären Kokosamins zusammengegeben und unter Rühren und Abtrennung des enthaltenen und entstehenden Reaktionswassers auf eine Temperatur von 100°C bis 180°C erhitzt.

Mit Beendigung der Wasserabtrennung besitzt das Reaktionsprodukt nach Herauslösen des gebildeten Kaliumchlorids mittels Wasser einen Amidierungsgrad von 98,3%. Durch destillative Aufarbeitung werden 248 g an N,N-Dimethylaminoessigsäurekokosamid erhalten.

#### Beispiel 4

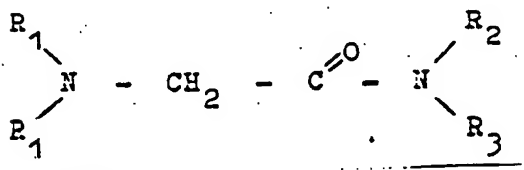
Wie Beispiel 3, wobei anstelle des Kokosamins 1 Mol Talgamin eingesetzt und die Abtrennung des Wassers mittels eines ständigen Inertgasstromes vorgenommen wird. Der Amidierungsgrad im Reaktionsprodukt beträgt nach der Salzabtrennung mittels warmem Wasser 94,3%. Durch destillative Aufarbeitung werden 284 g N,N-Dimethylaminoessigsäuretalgamid erhalten.

#### Beispiel 5

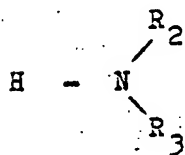
Wie Beispiel 3, wobei an Stelle des Kaliumsalzes das entsprechende Natriumsalz und an Stelle des Kokosamins das entsprechende Dikokosalamin eingesetzt wird. Der Amidierungsgrad im Reaktionsprodukt beträgt nach Abtrennung des Natriumchlorids mittels warmem Wasser 93,6%.

**Erfindungsanspruch :**

**1. Verfahren zur Herstellung von N,N-Dialkylglycinalkylamiden der allgemeinen Formel**



wobei  $R_1 = CH_3$ , bzw.  $C_2H_5$  und  $R_2 =$  Alkylreste, deren Gesamtkohlenstoffzahl 7 bis 22 beträgt,  $R_3 = R_2$ , H bedeuten, dadurch gekennzeichnet, daß man die entsprechende N,N-Dimethyl- bzw. Diethylaminoessigsäure und/oder deren Alkalisalze mit Fettaminen der allgemeinen Formel



direkt miteinander in der Weise umgesetzt, indem man bezogen auf molare Ansatzgrößen die Reaktionskomponenten zunächst in wäßriger Lösung bei Temperaturen von 20° bis 80°C in Gegenwart von 0,1 bis 1,1 Mol einer Säure, vorzugsweise Salzsäure, miteinander umsetzt, wobei der Wassergehalt der Reaktionsmischung 5 bis 45 Gewichts-% beträgt und anschließend durch Erwärmung der Reaktionsmischung auf Temperaturen bis 220°C, gegebenenfalls unter Einleitung von Inertgasen, das im Reaktionsgemisch vorhandene als auch das infolge Amidierungsreaktion entstehende Wasser entfernt.

2. Verfahren nach Punkt 1, dadurch gekennzeichnet, daß das bei Einsatz von Alkalisalzen der N,N-Dialkylaminoessigsäure entstehende Salz bis zur Beendigung der Umsetzung in der Reaktionsmischung verbleibt.